


Abteilung Strahlenschutz
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
des Landes Nordrhein-Westfalen



BEITRAG ZUR FILMDOSIMETRIE ENERGIE-
REICHER QUANTENSTRAHLUNG

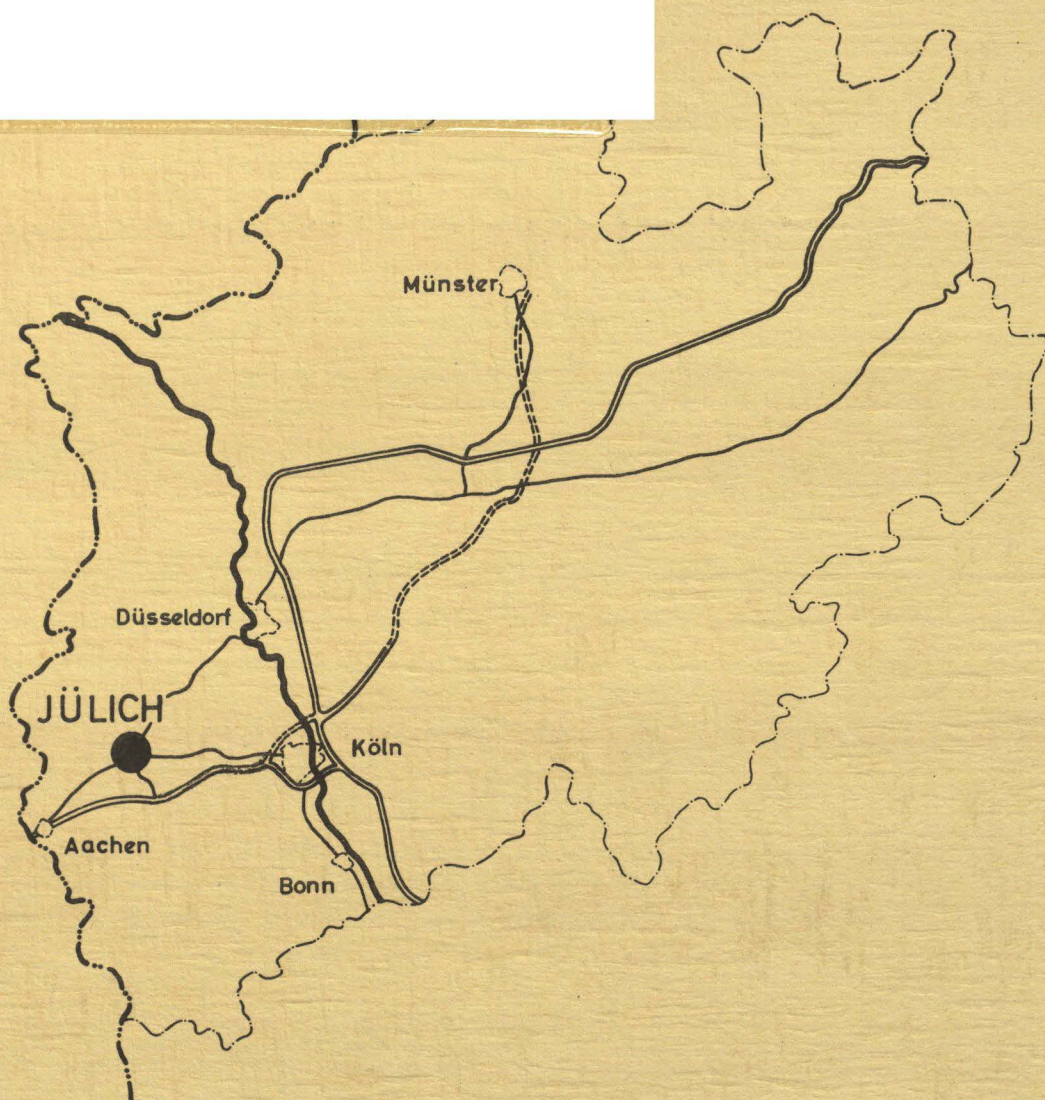
I. Theoretische Grundlagen
II. Experimentelle Ergebnisse

von

K. Becker

Jü1 - 34 - ST

Februar 1962



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 34

Abteilung Strahlenschutz Jül – 34 – ST

Dok.: PHOTOGRAPHIC FILM DETECTORS * DK 614.898.5 : 539.16.08

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich,
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

Sonderdruck

**FORTSCHRITTE
AUF DEM GEBIETE DER RÖNTGENSTRAHLEN
UND DER NUKLEARMEDIZIN
DIAGNOSTIK, PHYSIK, BIOLOGIE, THERAPIE**

UNTER MITWIRKUNG VON
W. FROMMHOLD, BERLIN · R. GLOCKER, STUTTGART · H. HOLTHUSEN, HAMBURG
H. LANGENDORFF, FREIBURG I. BR. · H. R. SCHINZ, ZÜRICH
HERAUSGEGEBEN VON R. GLAUNER, STUTTGART
VERLAG: GEORG THIEME VERLAG, STUTTGART
ANSCHRIFT FÜR SCHRIFTFÜHRUNG UND VERLAG: (14a) STUTTGART, HERDWEG 63

BAND 95

STUTTGART, IM NOVEMBER 1961

HEFT 5

Beitrag zur Filmdosimetrie energiereicher Quantenstrahlung

I. Theoretische Grundlagen

Von **K. Becker**

Mit 5 Abbildungen

Beitrag zur Filmdosimetrie energiereicher Quantenstrahlung

I. Theoretische Grundlagen

Von **K. Becker**

Mit 5 Abbildungen

Einleitung

Für die praktische Filmdosimetrie energiereicher Quantenstrahlung sind Anordnungen von großem Interesse, die Energieunabhängigkeit ihrer Dosisregistrierung mit hoher Empfindlichkeit gegenüber γ -Strahlung verbinden.

1953 haben Hoerlin und Mitarbeiter (1) folgendes Kompensationsprinzip beschrieben: Ein Film wird zwischen zwei organischen Szintillatoren exponiert, deren Fluoreszenzausbeute mit steigender Quantenenergie zunimmt, wodurch bei geeigneter Dimensionierung die zunehmende Wirkung des Fluoreszenzlichtes die abnehmende Wirkung der primären Strahlung aufheben kann. Wählt man den organischen Szintillator so groß, daß die Fluoreszenzwirkung stark überwiegt (die γ -Empfindlichkeit kann unter extremen Bedingungen auf das über 100fache gesteigert werden), zeigt der Film auch bei Verwendung von Leuchtstoffen, die energieunabhängig fluoreszieren, eine für viele Zwecke ausreichende Energieunabhängigkeit bei Energien größer als 50–100 keV (2, 3, 4).

Eine solche Film-Szintillator-Kombination kann bei größeren Szintillationskristallen recht voluminös sein (es sind Volumina bis zu mehreren Litern vorgeschlagen worden [5]). Auch erweist es sich als ungünstig, den Film nur im Dunkeln wechseln zu können. Andere vorgeschlagene Kombinationen, wie z. B. ein einem konventionellen Photoapparat vorgesetzter Leuchtkörper, dessen

Licht photographiert wird (6), haben sich nicht eingeführt. Wir haben deshalb vorgeschlagen, den Fluoreszenzkörper unmittelbar in die photographische Schicht einzubringen (7, 8), wodurch

1. infolge der wesentlich höheren Fluoreszenzlichtausnutzung die gewünschte Reduzierung der Energieabhängigkeit schon mit erheblich geringeren Mengen Szintillator erreichbar wird und
2. ein herkömmlich verpackter Film, der konventionell naßverarbeitet wird und auch in vielen üblichen Plaketten getragen werden kann, dennoch die Vorzüge der Film-Szintillator-Kombination aufweist.

In der vorliegenden Arbeit werden die theoretischen Grundlagen dieses neuartigen Dosismeßfilmes beschrieben.

Prinzip

Da der Definition der Röntgeneinheit r die Absorption energiereicher Quantenstrahlung in Luft zugrunde liegt, zeigen Medien anderer effektiver Ordnungszahl

$$Z_{\text{eff}} = \sqrt[3]{\frac{\sum n_i Z_i^4}{\sum n_i Z_i}} \quad (Z_i = \text{Ordnungszahl, } n_i = \text{Gewichtsanteil des Elementes } i)$$

oder effektiver Elektronenkonzentration

$$N_{\text{eff}} = L \frac{\sum n_i Z_i}{\sum n_i A_i} \quad (A = \text{Atomgewicht des Elementes } i, L = \text{Loschmidtsche Zahl})$$

als Luft eine andere Energieabhängigkeit der Strahlenwirkung.

Tabelle 1

Effektive Ordnungszahl und Elektronenkonzentration einiger Stoffe

	Z_{eff}	N_{eff}
Luft	7,7	$3,02 \cdot 10^{23}$
Silberbromid	43,5	$2,64 \cdot 10^{23}$
p-Terphenyl	6,0	$3,17 \cdot 10^{23}$

Deshalb weisen photographische Schichten, in denen Silberbromid als wichtigster Strahlenabsorber und Strahlendetektor wirkt, stets eine ausgeprägte Energieabhängigkeit ihrer Dosisregistrierung in r auf. Um diese Abhängigkeit zu kompensieren, müßte ein erheblicher Teil der Gesamtenergie in einem Material mit niedrigeren bzw. höheren Werten von Z_{eff} bzw. N_{eff} als Luft absorbiert und auf das Silberbromid zur Registrierung übertragen werden, d. h. das Silberbromid sollte zu einem viel geringeren Teil als Strahlenabsorber fungieren. Nun kann in praxi die strahlenabsorbierende Funktion des Silberbromids nicht ganz ausgeschaltet werden, da die resultierenden Anordnungen zu unhandlich wären (vgl. Teil II, Abb. 1).

Als Absorber eignet sich eine organische Substanz ohne schwerere Elemente, als Energieübertragungsmechanismus die Fluoreszenzlichtemission und -registrierung im vorliegenden Fall besonders gut. In Abb. 1 sind die wesentlicheren, zum Aufbau latenter Keime beitragenden Vorgänge, die sich bei Bestrahlung einer Silberbromid und p-Terphenyl (p-p'-Diphenylbenzol) als geeigneten Szintillator enthaltenden photographischen Schicht abspielen, schematisch zusammengestellt. Die Diskussion der Mechanismen der Quanten bzw. Elektronenwirkung auf photographische Schichten und auf organische Szintillatoren würde über den Rahmen dieser Betrachtung hinausgehen.

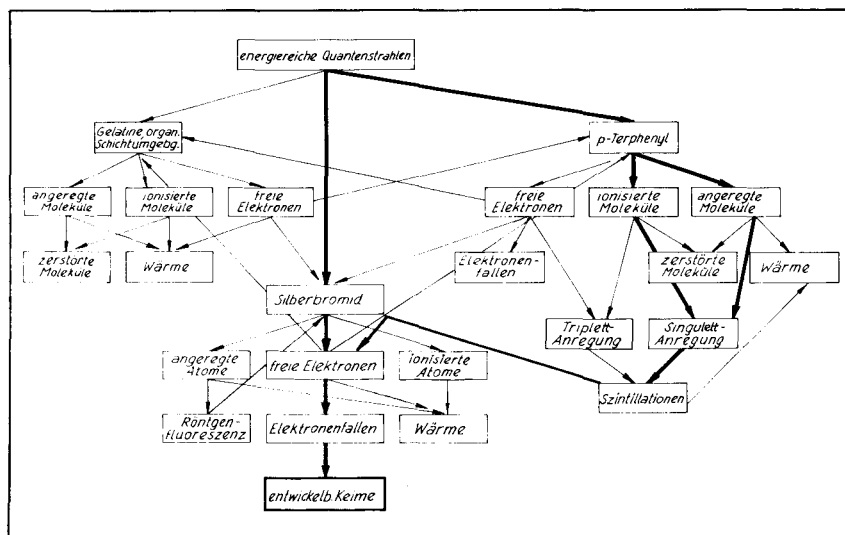


Abb. 1

Schematische Darstellung der Vorgänge, die in einer terphenylhaltigen Spezial-emulsion hauptsächlich zum Aufbau eines latenten Bildes und zum Verlust absorbierten Energie führen („freie“ Elektronen sind aus dem Atomverband gelöste Elektronen hoher Energie).

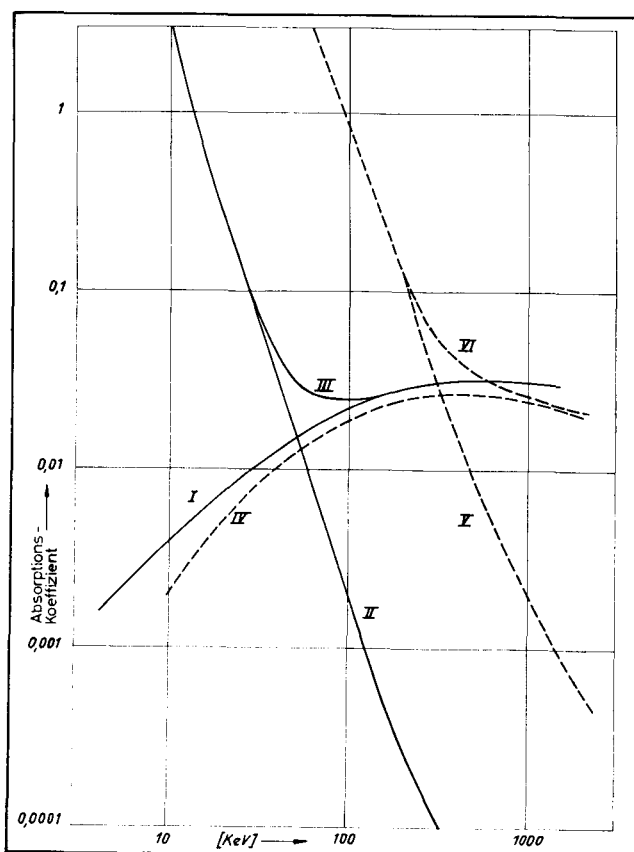


Abb. 2

Energieabsorption in p-Terphenyl und Silberbromid

Um die Energieabhängigkeit der Dosisregistrierung qualitativ zu beschreiben, genügt als 1. Näherung die Gegenüberstellung der Energieabsorption der betrachteten Substanzen. Für die Energieabsorption des p-Terphenyls $C_{14}H_{10}$ (93,87% C, 6,13% H) errechnen sich nach den von Victoreen (9) und Lea (10) für die Compton- und Photoeffekt-Energieabsorptionskoeffizienten $(\sigma_v/\rho)_0$ und $(\tau/\rho)_0$ angegebenen Werten durch Korrektur für Wasserstoff nach $(\sigma_v/\rho)_H = 1,98 (\sigma_v/\rho)_0$ die Zahlenwerte für die Compton-Energieabsorption des Terphenyls $(\sigma_v/\tau)_T$, den Photoeffekt-Massenabsorptionskoeffizienten $(\tau/\rho)_T$ und die totale Massenaabsorption $[(\tau + \sigma_v/\rho)_T]$ als Funktion der Quantenenergie gemäß

Abb. 2

Massenaabsorptionskoeffizienten für Comptoneffekt I, Photoeffekt II und totale Massenaabsorption III in Terphenyl — und Comptoneffekt IV, Photoeffekt V und totale Massenaabsorption VI in Silberbromid - - -.

Kurve I, II und III der Abb. 2. In analoger Weise haben Greening (11) und Mauderli (12) unter Berücksichtigung des Energieverlustes durch Fluoreszenz des Silberbromids die Absorptionskurven IV–VI der Abb. 2 gewonnen.

Nach Glocker (13) gilt für die Darstellung der Energieabhängigkeit der „Wirkung“ W von Röntgenstrahlen, d. h. des Anteiles der im untersuchten Volumen abgegebenen Energie, der dort verbleibt, die Formel

$$W \sim E_e = E_0 \frac{\alpha \tau + \sigma_v + \kappa}{\mu} (1 - e^{-\mu d}) \quad (1)$$

Dabei ist E_e die Energie der bei der Quantenenergie E_0 ausgelösten Elektronen, μ der Gesamt-Schwächungskoeffizient, κ der Paarbildungskoeffizient und α die Photoelektronenausbeute bei der Absorption (bei Abwesenheit von Absorptionskanten ist $\alpha = 1$). Nach Breitling (14) vereinfacht sich diese Beziehung im Fall organischer Fluoreszenzkörper (Atome niedriger Ordnungszahl, geringe Absorption) zu

$$W \sim E_e = E_0 \cdot d (\alpha \tau + \sigma_v + \kappa) \quad (2)$$

Da im hier untersuchten Bereich weder Absorptionskanten auftreten noch die Paarbildung in Erscheinung tritt, schreiben wir

$$W \sim E_e \sim E_0 (\tau + \sigma_v) \quad (3)$$

und erhalten für die Energieabhängigkeit der Strahlenabsorption bzw. Strahlenwirkung W' bezogen auf die Röntgeneinheit

$$W' = \frac{W}{W_L} \quad (4)$$

da in W'_T/W'_L definitionsgemäß $W'_L = 1$ ist, den Quotienten der spezifischen Energieabsorption in p-Terphenyl zu der in Luft als Maß der Energieabhängigkeit der Strahlenwirkung in Terphenyl W'_T :

$$W'_T = \frac{[(\tau + \sigma_v)/\xi]_T}{[(\tau + \sigma_v)/\xi]_L} \quad (5)$$

Nach den Ergebnissen verschiedener Autoren wird bei Quantenbestrahlung organischer Szintillatoren ein von der Quantenenergie unabhängiger Teil der absorbierten Energie als Fluoreszenzlicht reemittiert (vgl. 14, 15). Nach den von Broser (16) und Krokowski (17) gemessenen Werten für Natriumsalicylat und Phenanthren dürften etwa 4% der absorbierten Energie als Fluoreszenzlicht emittiert werden. Damit ist für das p-Terphenyl bei einer von 0,04 auf 1 MeV ansteigenden Quantenenergie etwa eine Verdopplung der Fluoreszenzintensität zu erwarten.

Auch im Falle des Silberbromids gibt der Quotient der Energieabsorption in AgBr zu der in Luft die für photographische Emulsionen gemessenen Energieabhängigkeit qualitativ gut wieder (vgl. auch Kurve II und III der Abb. 3). Normiert man die Kurven für Terphenyl und Silberbromid so, daß sie sich im Punkt maximaler Silberbromid-Absorption schneiden, zeigt sich deutlich die gegenläufige Tendenz der Energieabhängigkeiten (Abb. 3). Der graphische Mittelwert ergibt ab etwa 50 keV annähernd eine Gerade.

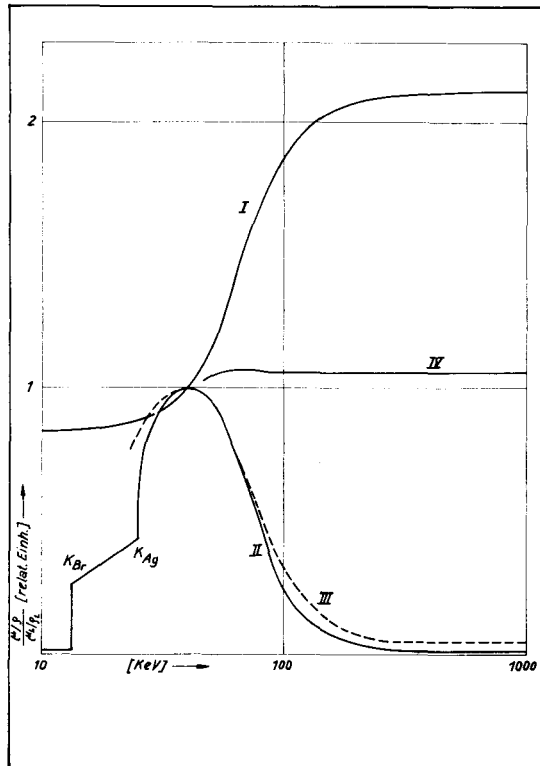


Abb. 3

Vergleich der Energieabhängigkeit der Quantenabsorption in Terphenyl I und Silberbromid II (K_{Br} und K_{Ag} sind die Absorptionskanten des Broms und Silbers), tatsächlich für eine photographische Emulsion gemessene Energieabhängigkeit III und Mittelwert von I und II: IV.

Primärschwärzung

Zur exakteren Beschreibung der Vorgänge muß eine 2. Näherung folgendes berücksichtigen: Durch den hohen Dispersionsgrad des Silberbromids und Terphenyls in der photographischen Schicht liegen die Reichweiten der freien Elektronen, welche durch die Quantenabsorption ausgelöst werden, in der Größenordnung der Korndurchmesser. Es kann deshalb im organischen Material der Schicht oder der Schichtumgebung (Schichtträger, Verpackung) absorbierte Quantenenergie zum Latentbildaufbau beitragen, während andererseits ein Teil der primär im Silberbromid oder Terphenyl ausgelösten Elektronenenergie erst außerhalb der Silberbromid- oder Terphenyl-Mikrokristalle zur Absorption kommt.

Eine 3. Näherung berücksichtigt den Umstand, daß das Silberbromidkorn in gewisser Analogie zu den treffertheoretischen Vorstellungen der Strahlenbiologie als „Schwellenenergiedetektor“ betrachtet werden muß, der nur auf eine Minimalenergie anspricht, während geringere oder höhere im Korn deponierte Energiebeträge noch nicht oder nicht mehr zusätzlich zur beobachtbaren Schwärzung beitragen. Eine vollständige quantitative Beschreibung schließlich müßte die genaue Korngrößen- und Kornempfindlichkeitsverteilung, die Elektronen- und Lichtstreuung im vorliegenden anisotropen Medium sowie eine Anzahl weiterer Faktoren berücksichtigen und ist z. Z. kaum durchführbar, da schon in der 2. und 3. Näherung einige Faktoren schwer erfaßbar sind und nur halbquantitative Aussagen möglich machen. Tellez-Plasencia hat zwar in einer außerordentlich gründlichen zehnjährigen Untersuchung das Zusammenwirken der aufgeführten Parameter für Emulsionen verschiedener Korngröße im Bereich von etwa 20–100 keV untersucht und weitgehend aufgeklärt (18–29), ohne daß jedoch die Ergebnisse ohne weiteres auf die Betrachtung der terphenylhaltigen Emulsion übertragen werden könnten.

Die durch direkte Strahlenwirkung auf das Silberbromid der Schicht erzeugte „Primärschwärzung“ $(S_n)_d$ sei für den linearen Bereich $S_n < 0,2$ der Funktion $S_n = f(D)$ (S_n ist die in Teil II näher definierte Normalschwärzung, D die Strahlendosis in r) in 1. bis 3. Näherung wie folgt beschrieben.

$$(S_n)_d = A [a_E \cdot b_E \cdot c \cdot d'_E \cdot (\mu_E/\rho)_{AgBr} + e] \quad (6)$$

Dabei ist A ein Empfindlichkeits- und Dimensionsfaktor und μ_E der wahre Energieabsorptionskoeffizient des AgBr.

a_E ist energieabhängig und soll berücksichtigen, daß mit abnehmender Ionisationsdichte der Elektronen, abnehmender Kornempfindlichkeit und abnehmendem Korndurchmesser die Wahrscheinlichkeit abnimmt, daß ein Elektron ein getroffenes Korn entwickelbar macht, weil die zur Bildung eines stabilen, entwickelbaren Keimes notwendige Mindestenergie u. U. nicht mehr im Korn deponiert wird. Diese Körner sind dann unterbelichtet, und die Annahme, die Schwärzung sei der im AgBr absorbierten Elektronenmenge proportional, bedarf ebenso einer Korrektur wie im gegenteiligen Fall der Überbelichtung durch Elektronen hoher Ionisationsdichte. Der Zahlenwert für $a \leq 1$ ist grundsätzlich aus den bekannten Energie-Reichweite- und Energie-Ionisationsdichte-Beziehungen für Elektronen in Silberbromid, der Elektronenenergieverteilung bei verschiedenen Quantenenergien, der Korngrößen- und Empfindlichkeitsverteilung, der Weglänge der Elektronen im Korn, der Schichtdicke, Packungsdichte und einer Anzahl weiterer Faktoren zugänglich.

Teilt man die Anteile der durch Quantenabsorption bei verschiedenen Energien im Silberbromid ausgelösten Elektronen entsprechend ihren Beiträgen zur Gesamtelektronenenergie in die fünf Gruppen Photoelektronen des Silbers, Photoelektronen des Broms, Augerelektronen des Silbers, Augerelektronen des Broms und Comptonelektronen ein und errechnet die zugehörigen Elektronenenergien, so ergibt sich ein Anteil der Elektronenarten an der Gesamtenergie gemäß Abb. 4 und eine wahre Energie (bzw. im Falle der Comptonelektronen eine durch Integration über die Winkelverteilung nach Lea (10) erhaltene mittlere Energie), wie sie in Abb. 5 dargestellt

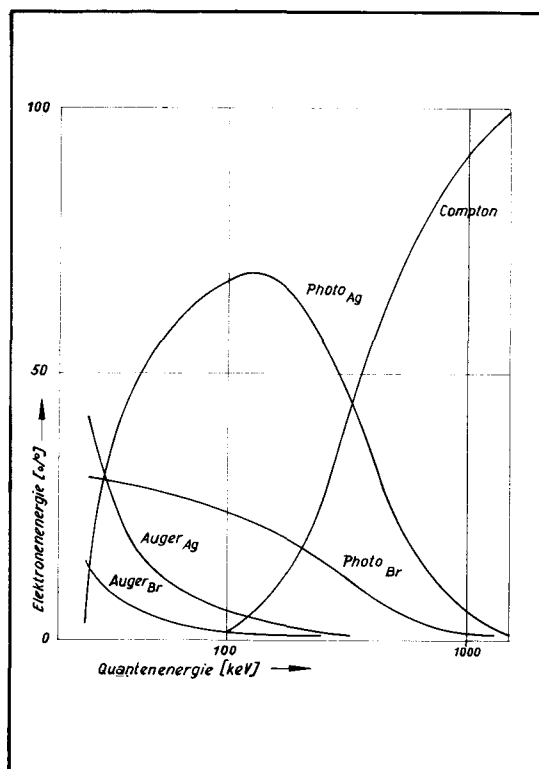


Abb. 4

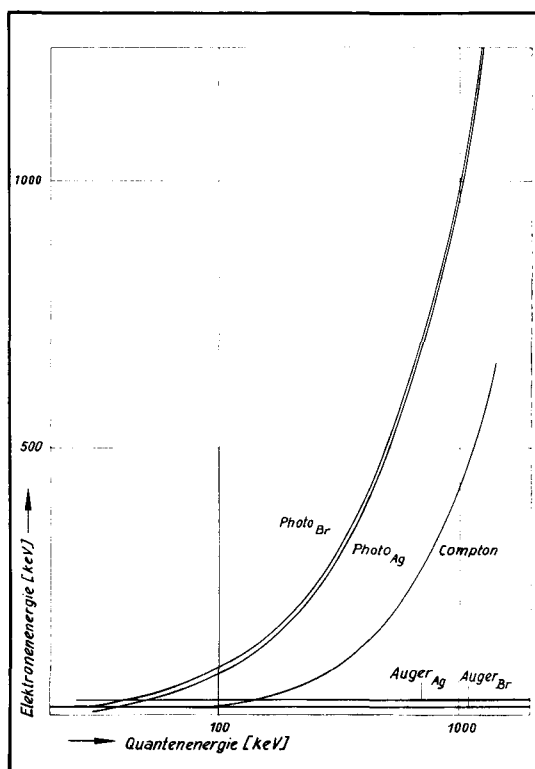


Abb. 5

Abb. 4. Energieabhängigkeit des Anteiles der bei der Quantenabsorption in Silberbromid entstehenden Elektronenarten an der insgesamt ausgelösten Elektronenenergie. — Abb. 5. Energieabhängigkeit der tatsächlichen bzw. mittleren (Compton-)Energie der im AgBr ausgelösten Elektronen.

ist. Daraus resultiert, daß die mittlere Elektronenenergie keineswegs proportional der Quantenenergie steigt.

Um zu einer groben Abschätzung des Verlaufes von $a = f(E)$ zu kommen, haben wir z. B. für den Fall einer empfindlichen Emulsion mit einem mittleren Korndurchmesser von $1,2 \mu$ und einer zur Entwickelbarkeit notwendigen Mindestenergie von $1,2 \text{ keV}$ pro Korn aus der Energie-Ionisationsdichte-Beziehung entnommen, daß für Elektronen im Energiebereich von etwa 60 bis 100 keV die Wahrscheinlichkeit maximaler Energieausnutzung am größten ist. Der Anteil der Elektronen dieser Energie ist aus den Abb. 4 und 5 zu entnehmen. Da bei mittleren Quantenenergien die Elektronen ihre gesamte Energie in der Schicht abgeben können (bei niedrigen Energien wird die Gesamtenergie in einem Korn deponiert, bei hohen Energien verläßt das Elektron die Schicht), muß die Abnahme ihrer Energie pro zurückgelegter Wegeinheit mitberücksichtigt werden. Die Ionisationsdichte der Elektronen nimmt gegen Ende ihrer Bahn stark zu, während sie über den größten Teil der zurückgelegten Weglänge relativ konstant bleibt. Ein Elektron kann also auf seinem Wege durch die Emulsionsschicht den Bereich der „Unterbelichtung“, der optimalen Energieausnutzung und der „Überbelichtung“ durchlaufen. Ein energiereiches Elektron kann außerdem Sekundärelektronen auslösen. Die ungenügende Kenntnis eines Teiles der aufgeführten Parameter schließt eine exakte Berechnung des Faktors a aus.

Da a energieabhängig ist und die Gesamtenergieabhängigkeit der Dosisschwärzung stark von a beeinflußt wird, hat Hoerlin (30) durch Überlegungen und Messungen versucht, die Zusammenhänge zu klären. Es zeigt sich, daß im untersuchten Bereich von etwa 10 bis zu etwa 50 keV

alle von ausgelösten Elektronen getroffenen Körner entwickelbar werden, während der Prozentsatz dieser Körner mit weiter steigender Quantenenergie und abnehmender Kornempfindlichkeit abnimmt. Durch Erhöhung der Korngröße und der Kornempfindlichkeit sollte es danach möglich sein, einen höheren Prozentsatz der getroffenen Körner entwickelbar zu machen, d. h. die Energieabhängigkeit zu reduzieren. Der Einfluß der Goldsensibilisierung bei konstanter Korngröße wurde von Hoerlin und Mueller (31), der Einfluß der Korngröße bei etwa gleicher Kornempfindlichkeit von uns gemessen (vgl. Teil II) und steht im Einklang mit diesen Überlegungen.

b_E gibt den Teil der nicht aus der Emulsionsschicht nach beiden Seiten verlorengehenden Elektronen an und wurde als Funktion der Emulsionsdicke und der Elektronenreichweite von Greening (11) berechnet.

c ist der Faktor, der den Anteil der im Silberbromid ausgelösten und in der Emulsionsschicht verbleibenden, aber im organischen Medium (Gelatine, Terphenyl) absorbierten Elektronen beschreibt (11).

d' berücksichtigt, daß ein mit der Schichtdicke, der Schichtzusammensetzung und der Quantenenergie wechselnder Teil vom Silberbromid reemittierter Fluoreszenz-Röntgenstrahlung sekundär in der Schicht wirksam wird. Die Werte von d' sind von Tellez-Plasencia und Theron (28, 29) und von Greening (11) berechnet worden.

e als additive Konstante gibt die Energie an, die einem in einem großen Volumen organischer Substanz eingebetteten Silberbromid-Mikrokristall durch die im organischen Medium ausgelösten Elektronen übertragen wird. Bei hoher Packungsdichte des Silberbromids muß dessen Volumen vom Volumen des organischen Mediums abgezogen werden.

Sekundärschwärzung

Zu der Primärschwärzung wird sich im Fluoreszenzfilm die sekundäre Schwärzung durch Wirkung des emittierten Fluoreszenzlichtes addieren. Wenn man den durch Vorliegen eines Mehrtreffervorganges auftretenden Durchhang und scheinbaren Schwellenwert der Schwärzungsfunktion $(S_n)_f = f(D)$ für kleinere Werte von S_n der durch das Fluoreszenzlicht verursachten Sekundärschwärzung $(S_n)_f$ vernachlässigt, kann die Sekundärschwärzung durch eine der Primärschwärzung analogen Näherungsgleichung beschrieben werden:

$$(S_n)_f = A \left[\alpha \cdot \beta \cdot \gamma \cdot \delta \left(\frac{\sigma_v + \tau}{\rho} \right)_T + \varepsilon \right] \quad (8)$$

Es ist dabei

α die Fluoreszenzausbeute des p-Terphenyls,

β berücksichtigt die Eigenabsorption des Fluoreszenzlichtes im Terphenyl-Mikrokristall, die im Falle des Terphenyls gering ist, und in der Gelatine,

γ ist der Teil des Fluoreszenzlichtes, der in der Schicht verbleibt und nicht nach außen verloren geht. Bei Reflexion des die Schicht verlassenden Lichtes zurück in die Schicht durch geeignete Reflexionsmaterialien bedarf γ natürlich einer Korrektur zu γ' ,

δ gibt an, wie die photographische Wirksamkeit des im Silberbromid absorbierten Fluoreszenzlichtes relativ zu der gleichen Energie energiereicher Elektronen ist, und

ε ist die Energie, die dem Terphenyl aus dem organischen Umgebungsmaterial übertragen wird, zuzüglich derjenigen Energie, die ihm vom AgBr der Schicht übertragen wird.

Über die Größe δ kann gesagt werden: Während nach Messungen von Hoerlin (30) für sichtbares Licht (4250 Å) im Falle eines hochempfindlichen Filmes pro Korn nur 8 Silberatome erforderlich waren, um es entwickelbar zu machen (der Grenzwert liegt bei 4 Lichtquanten entsprechend 4 Silberatomen), mußten bei Elektronenbestrahlung 270 bzw. nach Goldsensibilisierung (31) 160 Silberatome, entsprechend einer Energie von etwa 1,2 keV, erzeugt werden. Okrent und Solomon (32) erhielten mit einer Bromojodidemulsion für Kernspuraufnahmen Werte von

62 Silberatomen (entsprechend etwa 0,47 keV), d. h. die Kornempfindlichkeit gegenüber Licht ist etwa 8 . . . 35fach größer als bei Elektronen- bzw. energiereicher Quantenstrahlung. Der Grund hierfür liegt hauptsächlich in der höheren Dispersion der erzeugten Silberatome beim Elektronendurchgang und dem andersgearteten Anregungsmechanismus.

Gesamtschwärzung

Die Gesamtschwärzung $(S_n)_g$ der AgBr-Terphenyl-Kombination ist für geringe Absolutschwärzungen ($S_n < 0,2$)

$$(S_n)_g = (S_n)_d + (S_n)_f \quad (9)$$

und für die Dosisschwärzung gilt entsprechend

$$\frac{(S_n)_g}{D} = \frac{(S_n)_d + (S_n)_f}{D} \quad (10)$$

Für die energieunabhängige Registrierung der Dosis in r soll $(S_n)_g/D = \text{const.}$ für alle Quantenenergien zwischen etwa 50 keV und 5 MeV (zunehmender Anteil der Paarbildung) werden. Die Kompensationsbedingung lautet dann

$$(S_n)_d + (S_n)_f = A \left[a_E b_E c d_E \left(\frac{\mu_E}{\rho} \right)_{\text{AgBr}} + e + \alpha \beta \gamma \delta \left(\frac{\sigma_v + \tau}{\rho} \right)_T + \varepsilon \right] = \left(\frac{\sigma_v + \tau}{\rho} \right)_L \quad (11)$$

oder aber

$$x = \frac{A[a_E b_E c d_E (\mu_E/\rho)_{\text{AgBr}} + e + \alpha \beta \gamma \delta \{(\sigma_v + \tau)/\rho\}_T + \varepsilon]}{[(\sigma_v + \tau)/\rho]_L} = \text{const.} \quad (12)$$

für alle Quantenenergien 50—5000 keV, d. h.

$$dx/dE = 0 \quad (13)$$

im angegebenen Bereich von E.

In Worten: Die Summe der Teile der im AgBr und Terphenyl absorbierten Gesamtenergie, die tatsächlich zum Aufbau eines latenten Bildes beiträgt, soll der Energieabsorption in Luft im Quantenenergiebereich von etwa 50—5000 keV proportional sein.

Die Dosisschwärzung einer photographischen Schicht hängt auch vom Einfallswinkel der Strahlung ab, und zwar nimmt sie bei flacher werdendem Einfallswinkel ab, bei Strahlen geringerer Energie stärker, bei hoher Quantenenergie schwächer. Die bevorzugte Bewegungsrichtung der in Schichtumgebung und Schicht ausgelösten Elektronen hängt vom Einfallswinkel der Quanten ab. Da die Fluoreszenzlichtemission unabhängig von der Richtung der anregenden Quanten bzw. Elektronen ist, sollten Film-Szintillator-Kombinationen eine geringere Richtungsabhängigkeit zeigen.

Photographische Effekte

In den Gleichungen (6, 8, 12) ist die Abhängigkeit der Dosisschwärzung von der zeitlichen Verteilung der Dosisbelastung noch nicht berücksichtigt. Diese Abhängigkeit resultiert im vorliegenden Fall von Belichtungszeiten größer als etwa 1 Sek. vorwiegend aus der Überlagerung der thermischen Dissoziation der Subkeime und der chemischen Oxydation von Sub- und Vollkeimen durch Sauerstoff- und Feuchtigkeitseinwirkung. Im folgenden soll unter Langzeitfehler nur die relativ schnell ablaufende physikalische Dissoziationskomponente, unter Fading die langsamere chemische Oxydation verstanden werden. In praxi überlagern sich beide Vorgänge.

Solange die Funktion $(S_n)_d = D \cdot \text{const.}$ für Werte von $(S_n)_d < 0,2$ streng gültig ist, d. h. das Fehlen einer Durchbiegung der Schwärzungskurve das Vorliegen eines Eintrefferprozesses beweist, kann infolge der relativ großen Stabilität der gebildeten Keime auch kein echter Langzeitfehler auftreten, wie dies von Ehrlich (33) mit einer empfindlichen Emulsion und 50 kV Röntgenstrahlung für den ansteigenden Teil der Schwärzungskurve bewiesen wurde. Für wenig

empfindliche Emulsionen und ausgelöste Elektronen geringer Ionisationsdichte ist dagegen mit dem Auftreten von Mehrtrefferprozessen auch eine Durchbiegung der Schwärzungskurve und ein Langzeitfehler zu erwarten. Zu diesem geringen energieabhängigen Langzeitfehler von $(S_n)_d$ sollte sich ein ausgeprägter energieunabhängiger Langzeitfehler addieren, wie er von verschiedenen Autoren auch für Film-Szintillator-Kombinationen beschrieben worden ist (1–4). Da die Relation $(S_n)_d/(S_n)_f$ aber energieabhängig ist, würde die exakte Erfüllbarkeit der Kompensationsbedingung (13) dadurch ausgeschlossen. Tatsächlich konnte aber weder für terphenylhaltige noch für konventionelle Emulsionen ein Langzeitfehler gefunden werden, wenn die Proben innerhalb etwa eines Tages nach der Exposition entwickelt wurden, während nach unveröffentlichten Versuchen von Matejec (34) mit zunehmender Lagerungszeit nach der Exposition anscheinend ein „intensitätsabhängiges Fading“ auftritt. Der Zusammenhang zwischen Langzeitfehler und Fading einerseits und Strahlungsintensität und -energie andererseits bedarf weiterer Untersuchungen.

Bei abnehmender Dosisleistung, d. h. abnehmender Dichte des in die Schicht einfallenden Quanten- bzw. Elektronenregens, wird die annähernd homogene Lichtbelastung des einzelnen Silberbromidkornes zunehmend inhomogen und löst sich infolge der geringen Abklingzeiten der einzelnen Szintillationen von etwa $0,5 \cdot 10^{-8}$ sec (35) in einzelne kurze Lichtblitze auf, deren mittlerer zeitlicher Abstand von der Dosisleistung und deren Intensität, bezogen auf einen beliebigen Punkt in der Emulsion, von der szintillationsauslösenden Elektronenenergie und der Entfernung Szintillationsort — Beobachtungsort näherungsweise abhängt. Infolge der statistischen Verteilung des Quantenregens ist dennoch kein Intermittenzeffekt zu erwarten. Es sei an dieser Stelle an die Ähnlichkeit der Verteilung des latenten Bildes bei Röntgen- und sehr kurzen Lichtbelichtungen erinnert (36).

Zusammenfassung

Im theoretischen Teil wird der Mechanismus der Einwirkung von Röntgen- und γ -Strahlung auf photographische Emulsionen diskutiert, denen der organische Fluoreszenzkörper p-Terphenyl zur Kompensation der Energieabhängigkeit der Dosisregistrierung und zur Erhöhung der Empfindlichkeit zugesetzt wurde. Die Betrachtung der Vorgänge, die zur Schwärzung führen, läßt qualitative und halbquantitative Aussagen zu, eine vollständige quantitative Berechnung scheitert jedoch an der ungenügenden Kenntnis einiger Parameter.

Summary

In the theoretical part the mechanism is discussed of the action of X-rays and gamma-radiation on photographic emulsions to which the organic fluorescent substance p-terphenyl was added. This addition was made with a view to compensate for the energy dependence of the photographic dose response and to increase sensitivity. The consideration of the processes which produce photographic density permits qualitative and semi-quantitative statements to be made, whereas a complete quantitative calculation is not possible because of the insufficient knowledge of some parameters. (G. S.)

Résumé

Exposé théorique avec discussion du mécanisme de l'action des rayons X et des rayons γ sur les émulsions photographiques additionnées d'un corps fluorescent le p-Terphenyl qui permet de compenser l'influence de l'énergie par l'enregistrement de la dose et d'augmenter la sensibilité. L'observation des processus, qui déterminent un noircissement mesurable par la photométrie permet d'obtenir des renseignements qualitatifs et semi-quantitatifs; les déterminations quantitatives ne sont possibles en raison de l'ignorance partielle de quelques paramètres. (A.-M. M.)

Resumen

En la parte teórica se discute el mecanismo de acción de rayos X y gamma sobre emulsiones fotográficas, a las cuales se ha añadido la sustancia orgánica fluorescente p-Terphenyl para la compensación de la dependencia energética del registro de dosis y para el aumento de la sensibilidad. La observación de los procesos que llevan al ennegrecimiento captable fotométricamente permite conclusiones cualitativas y semicuantitativas, sin embargo, fracasa un cálculo cuantitativo completo por los conocimientos insuficientes de algunos parámetros. (E. L.)

Schrifttum

- (1) Hoerlin, H., Clark, R. H., Jones, D. P., Kaszuba, F. J., und Larson, E. T.: ANL-5168 [1953]. — (2) Sommermeyer, K., und Heiner, G.: Naturwiss. 42 [1955]:508, vgl. auch Diplomarbeit G. Heiner, Univ. Freiburg i. Br. 1956. — (3) Barnaby, C. F.: AWRE 0—28/56 [1956]. — (4) Ehrlich, M., und McLaughlin, W. L.: NBS Technic. Note 29 [1959]. — (5) Fünfer, E.: DAS 1.026.886 [angem. 1955]. — (6) Polaroid-Corp.: US.-Pat. 2.705.757 [1955]. — (7) Becker, K., Klein, E., und Zeitler, E.: DAS 1.082.120 [angem. 1957]. — (8) Becker, K., Klein, E., und Zeitler, E.: Naturwiss. 47 [1960]:199. — (9) Victoreen, J. A.: J. Appl. Physiol. 20 [1949]:1141. — (10) Lea, D. E.: Actions of Radiations on Living Cells. Cambridge 1946, p. 348. — (11) Greening, J. R.: Proc. Phys. Soc. 64 B [1951]:977. — (12) Mauderli, W.: Fortschr. Röntgenstrahlen 86 [1957]:634. — (13) Glocker, R.: Röntgen- und Radiumphysik für Mediziner. Stuttgart 1949, S. 123. — (14) Breitling, G.: Z. angew. Physik 4 [1952]:401. — (15) Messner, D.: Z. Phys. 147 [1957]:24. — (16) Broser, I., Kallmann, H., und Martius, U. M.: Zschr. Naturforsch. 4a [1948]:204. — (17) Krokowski, E.: Zschr. Naturforsch. 14b [1959]:304. — (18) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 19 [1948]:46. — (19) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 24 [1953]:1. — (20) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 25 [1954]:41. — (21) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 25 [1954]:225. — (22) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 25 [1954]:424. — (23) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 26 [1955]:312. — (24) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 28 [1957]:144. — (25) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 28 [1957]:235. — (26) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 29 [1958]:297. — (27) Tellez-Plasencia, H.: Sc. Ind. Phot. 30 [1959]:41. — (28) Tellez-Plasencia, H., und Theron, P.: Sc. Ind. Phot. 21 [1950]:361. — (29) Tellez-Plasencia, H., und Theron, P.: Sc. Ind. Phot. 24 [1953]:220. — (30) Hoerlin, H.: J. Optic. Soc. America 39 [1949]:891. — (31) Hoerlin, H., und Mueller, F. W. H.: J. Optic. Soc. America 40 [1950]:246. — (32) Okrent, D., und Solomon, A. K.: Phys. Rev. 83 [1951]:826. — (33) Ehrlich, M.: J. Optic. Soc. America 46 [1956]:797. — (34) Matejec, R.: Privatmitt. — (35) Krebs, A.: Erg. exakt. Naturwiss. 27 [1953]:375. — (36) Klein, E.: Mitt. Agfa-Forschungslab. II [1958]:84.

Anschrift: Dr. Klaus Becker, Jülich, Fischerstr. 21

Sonderdruck

**FORTSCHRITTE
AUF DEM GEBIETE DER RÖNTGENSTRAHLEN
UND DER NUKLEARMEDIZIN
DIAGNOSTIK, PHYSIK, BIOLOGIE, THERAPIE**

UNTER MITWIRKUNG VON
W. FROMMHOLD, BERLIN · R. GLOCKER, STUTTGART · H. HOLTHUSEN, HAMBURG
H. LANGENDORFF, FREIBURG I. BR. · H. R. SCHINZ, ZÜRICH

HERAUSGEGEBEN VON R. GLAUNER, STUTTGART

VERLAG: GEORG THIEME VERLAG, STUTTGART
ANSCHRIFT FÜR SCHRIFTFÜHRUNG UND VERLAG: (14a) STUTTGART, HERDWEG 63

BAND 95

STUTTGART, IM DEZEMBER 1961

HEFT 6

Beitrag zur Filmdosimetrie energiereicher Quantenstrahlung

II. Experimentelle Ergebnisse

Von **K. Becker**

Mit 11 Abbildungen

Beitrag zur Filmdosimetrie energiereicher Quantenstrahlung

II. Experimentelle Ergebnisse

Von K. Becker

Mit 11 Abbildungen

$(S_n)_d$ und $(S_n)_f$ läßt sich in folgender Anordnung unschwer differenzieren und damit das in Teil I, Abb. 3 dargestellte Kompensationsprinzip verifizieren: Durch eine Blende fällt die Primärstrahlung in ein Bleigefäß, das in einer Bleiglasküvette (zur Abschirmung von Streustrahlung) einen Flüssigszintillator enthält und um die ein registrierender Film gelegt wurde (Abb. 1). Die Ergebnisse von Bestrahlungen einer p-Terphenyllösung in Benzol und in einem energieunabhängigen Benzol-Chlorbenzol-Gemisch (1) decken sich gut mit der Theorie. Zu einem analogen Befund kam auch Hoerlin (2) mit Preßschichten aus p-Terphenyl und Polymethylmethacrylat.

Szintillator- und Emulsionsauswahl

In Übereinstimmung mit den Ergebnissen Hoerlins (2) wurde p-Terphenyl als für die Versuche am besten geeignet gefunden: Es ist als Substanz mit hoher Fluoreszenzlichtausbeute billig in relativ großer Reinheit zugänglich. Das bei der Diphenylsynthese als technisches Nebenprodukt anfallende Terphenyl-Isomeren-Gemisch läßt sich durch Vakuumdestillation und Umkristallisieren aus der fünffachen Menge frisch destilliertem Toluol in p-Terphenyl hoher Fluoreszenzausbeute und m-Terphenyl geringer Fluoreszenzausbeute trennen. Beim weiteren Reinigen des p-Terphenyl durch wiederholte Vakuumdestillation und Umkristallisieren verschwindet zunächst die bei Tageslicht direkt sichtbare gelbgrünliche Fluoreszenz und die Banden ändern sich ein wenig, ohne daß die absolute Fluoreszenzausbeute wesentlich günstiger würde.

Die Selbstabsorption des p-Terphenyl für das emittierte Fluoreszenzlicht ist gering. Es ist relativ strahlungsresistent und merkliche Veränderungen seiner Eigenschaften sind im interessierenden Dosisbereich nicht zu erwarten. Die Maxima der Lichtemission fallen in das Gebiet der Silberbromid-Eigenabsorption und damit hoher photographischer Empfindlichkeit. Würde nämlich ein anderer Fluoreszenzkörper mit einem Emissionsmaximum außerhalb der Silberbromid-Eigen-Empfindlichkeit angewandt, wäre die zusätzliche Beimischung sog. wavelength shifter, welche das Emissionsspektrum in geeigneter Weise verändern, oder eine Sensibilisierung des Silberbromids unumgänglich. Versuche mit p-Terphenyl zeigten aber, daß der organische Fluoreszenzkörper in den beträchtlichen in der Schicht vorhandenen Mengen einen großen Teil des zugesetzten Sensibilisators ziemlich fest adsorbiert, wodurch dieser Sensibilisator für die Silberbromid-Sensibilisierung verlorengeht und überdies vom p-Terphenyl emittiertes Fluoreszenzlicht durch den an der Oberfläche des Mikrokristalls absorbierten Farbstoff reabsorbiert werden kann.

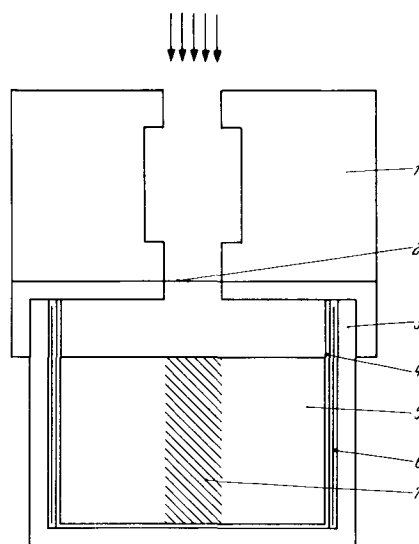


Abb. 1

Versuchsanordnung zur Fluoreszenzlichtregistrierung ohne Direktschwärzung: 1 Bleiblende, 2 Schwarzpapier, 3 Bleigefäß, 4 Bleiglasküvette, 5 Flüssigszintillator, 6 Registrierfilm, 7 bei Bestrahlung leuchtendes Flüssigkeitsvolumen.

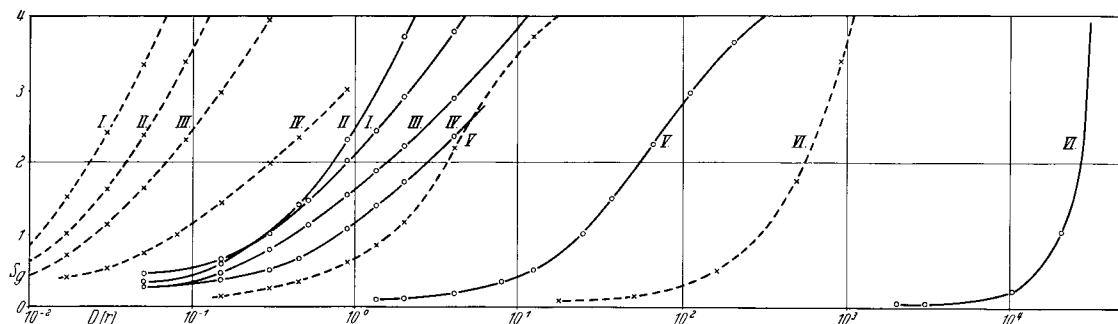


Abb. 2

Schwärzungskurven verschiedener photographischer Materialien im Bereich maximaler und minimaler Empfindlichkeit: - - - - - 44 keV (50 kV Röhrenspannung, 0,4 mm Cu + 0,5 mm Al) ————— 1250 keV (Co 60, Elektronengleichgewicht). Entwicklung 4 Min. bei 20° C in Röntgen-DIN-Entwickler. I Agfa Sino, II Adox hochempfindlicher Dosismeßfilm, III Kodak Radiation Monitoring Film (beide Emulsionen), IV Gevaert Zahnfilm (mit Verstärkerfolie verpackt), V Adox unempfindlicher Dosismeßfilm und VI Agfa Mikrat Platte.

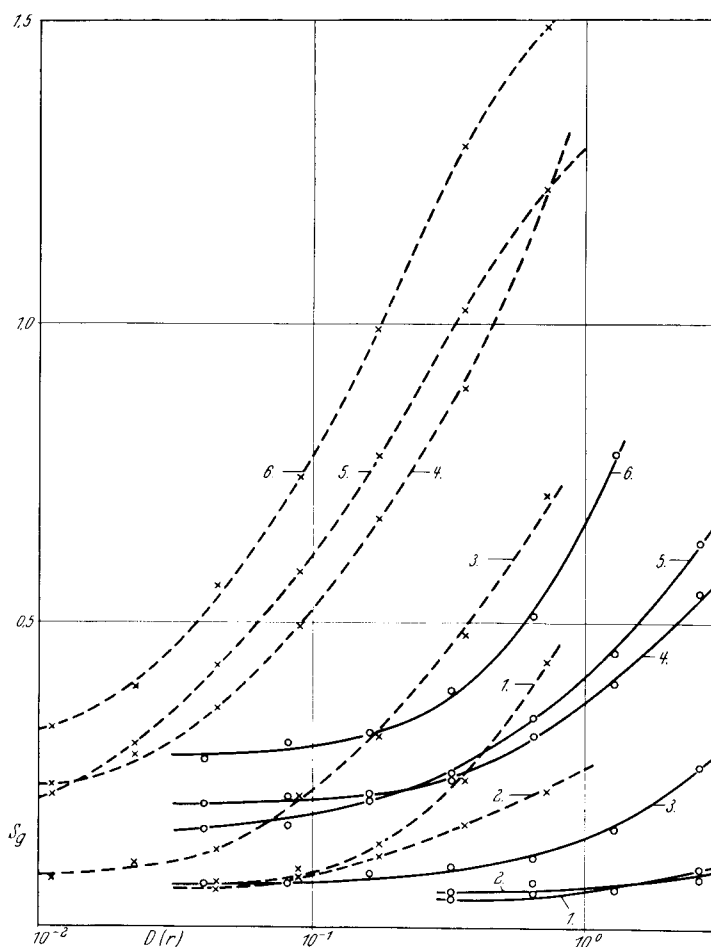


Abb. 3

Schwärzungskurven verschiedener Agfafilme unter denselben Bedingungen wie Abb. 3: 1. Agepe, 2. IFF, 3. IF, 4. ISS, 5. Ultra und 6. Rekord.

p-Terphenyl ist in Wasser völlig unlöslich, eine Wechselwirkung mit Silberbromid ist nicht zu erwarten und wurde auch nicht gefunden. Die Lichtausbeute des nächsthöheren Polyphenyls Quatrophenyl ist zwar um das Doppelte größer, jedoch ist diese Verbindung schwerer in erforderlicher Reinheit zugänglich.

Zur Ermittlung der für die vorliegende Aufgabe am besten geeigneten Emulsion wurden zunächst die Schwärzungskurven verschiedener kommerzieller Emulsionen im Bereich maximaler und minimaler Quantenempfindlichkeit gemessen (Abb. 2). Es ergibt sich eine besondere Eignung der Agfa-Sino-Emulsion infolge höchster Empfindlichkeit. In einem weiteren Versuch wurden die Schwärzungskurven verschiedener Emulsionen mit unterschiedlichem mittlerem Korndurchmesser und unterschiedlicher Lichtempfindlichkeit, aber ähnlicher emulsionstechnischer Herstellung und Kornempfindlichkeit aufgenommen (Abb. 3) und die Energieabhängigkeit als Härtefaktor HF, wie weiter unten beschrieben, bestimmt

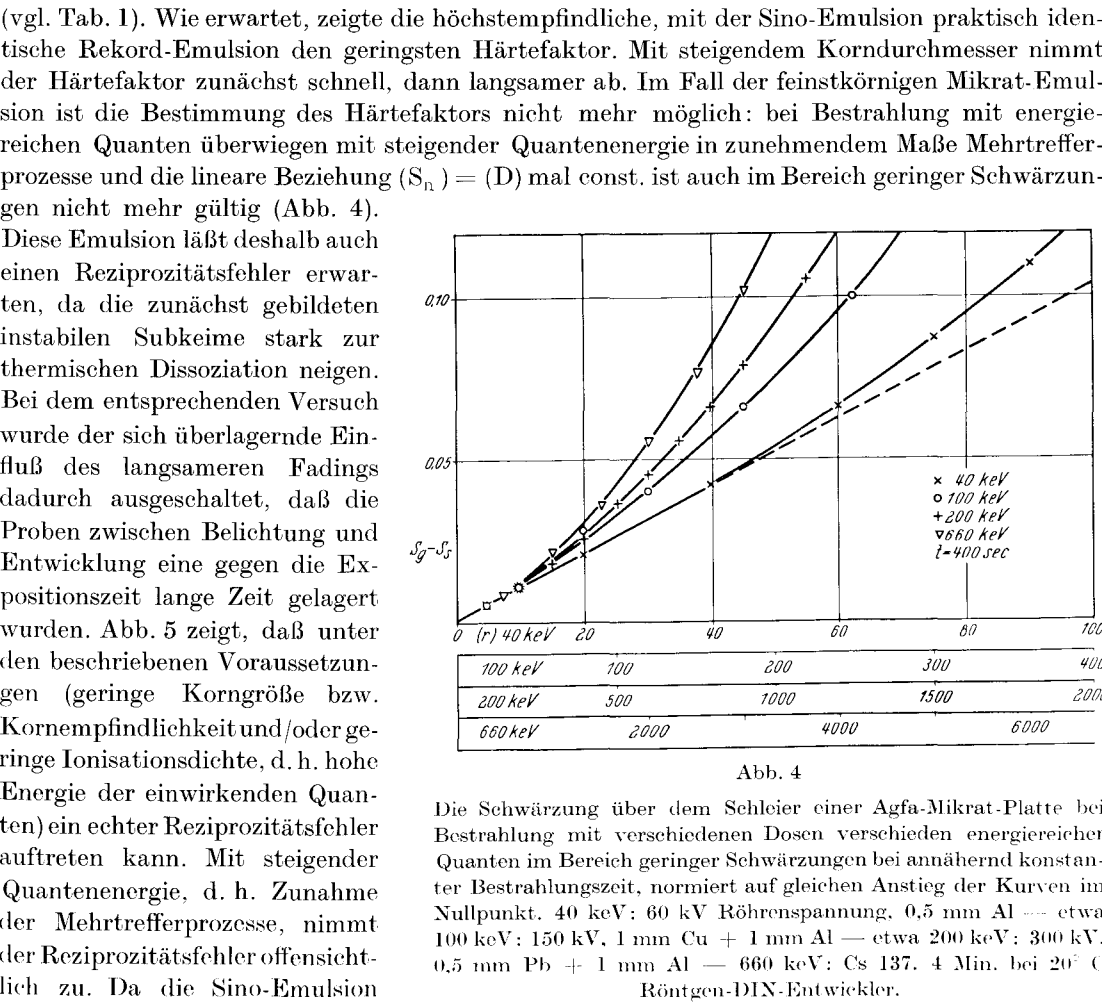
Tabelle 1
Röntgen-Gamma-Empfindlichkeit und Härtefaktor von Emulsionen verschiedener
Lichtempfindlichkeit

Filmsorte	Mittlerer Korn- durchmesser [μ]	Licht- empfind- lichkeit [$^{\circ}$ DIN]	Röntgen- empfindlichkeit [D (S _G —S _S) = 0,04] 44 keV*	Gamma- empfindlichkeit [D (S _G —S _S) = 0,04] 1250 keV**	Härte- faktor
Mikrat	0,025		16,2 r	1560 r	
Agepe	0,3	ca. 9	0,0675 r	1,69 r	25
IFF	0,3	13	0,0118 r	2,56 r	22,7
IF	0,4	17	0,0245 r	0,46 r	18,7
ISS	0,6	21	0,010 r	0,183 r	18,3
Ultra	0,8	25	0,0063 r	0,113 r	18,0
Rekord	1,2		0,0057 r	0,093 r	16,3

* 50 kV Röhrenspannung, 0,4 mm Cu + 0,5 mm Al.

** Co 60, Elektronengleichgewicht.

Entwicklung nach 20 Stunden 4 Minuten bei 20° C in Röntgen-DIN-Entwickler.



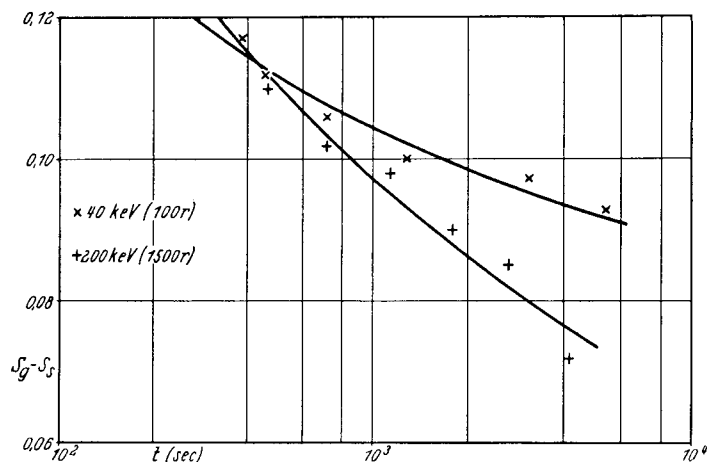


Abb. 5

Abhängigkeit der gemessenen Schwärzung von der Bestrahlungszeit einer Agfa-Mikrat-Platte bei verschiedenen Quantenenergien.

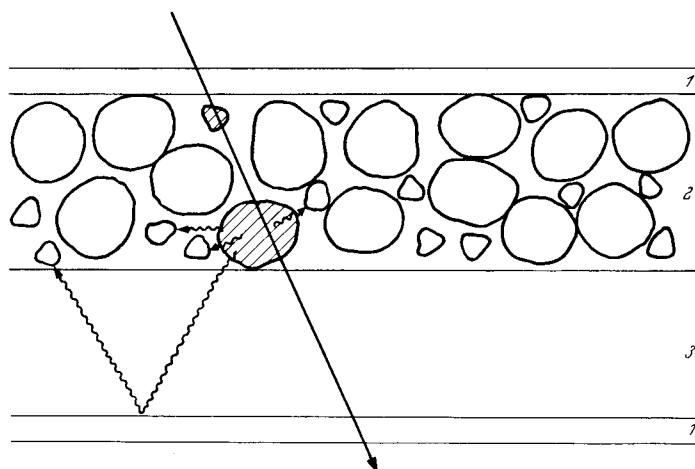


Abb. 6

Schematischer Querschnitt durch einen Versuchsfilm: 1. Filmverpackung und Lichtreflektor, 2. Emulsion mit Silberbromid Δ und p-Terphenyl \bigcirc , 3. Schichtträger, Primärstrahlung \rightarrow und Fluoreszenzlicht $\sim\rightarrow$. Versuchsfilmbeispiel: Mittlerer Korndurchmesser AgBr 1,2 μ , Terphenyl 3,6 μ , Volumenverhältnis AgBr/Terphenyl 1:27, Gewichtsverhältnis 1:5.

durch die starke Lichtstreuung in der Schicht (der Film hat Mattglasbeschaffenheit) etwas erhöht. Um die Emulsionen mit verschiedenen Terphenyl- und Silberschleierwerten und verschiedenen Maximalschwärzungen zu vergleichen, wurde den Darstellungen eine „Normalschwärzung“ S_n zugrunde gelegt,

$$S_n = \frac{S_g - S_s}{S_M - S_s} \quad (1)$$

* Diese Beziehung genügt für die Betrachtung kleiner Werte von S_n den zu stellenden Anforderungen. Für $0,2 < S_n < 1$ müssen die genaueren Beziehungen nach Trivelli und Silberstein (3, 4, 5) Anwendung finden.

auch die höchste Lichtempfindlichkeit aufweist und infolge ihres großen Korndurchmessers einen geringen Latentbildschwind erwarten läßt, ist sie für die Versuche optimal geeignet.

Fluoreszenzfilm

Abb. 6 stellt einen schematischen Querschnitt durch den Fluoreszenzfilm dar. Das zur Energieunabhängigkeit führende Abmischungsverhältnis Silberbromid zu Terphenyl wurde für verschiedene Emulsionen empirisch ermittelt. Das jeweilige AgBr/Terphenyl-Verhältnis ist vorwiegend eine Funktion des Härtefaktors der Schicht und der Relation der Röntgen-Gamma- zur Lichtempfindlichkeit. Andere Parameter, wie Schichtdicke, Silberauftrag, Größe der Terphenylkristalle usw. sind von etwas geringerem Einfluß. Die Fluoreszenzausbeute kann gesteigert, d. h. der Terphenylzusatz reduziert werden, wenn spiegelnde Metallfolien oder diffus reflektierende Stoffe das die Schicht verlassende Licht zurückspiegeln. In Abb. 7 ist die Änderung der Empfindlichkeit dargestellt, die man erhält, wenn zwischen der lichtdichten Schwarzpapier-Filmverpackung und dem Film sich Reflektorschichten aus weißem Papier und Aluminiumfolie befinden. Obwohl p-Terphenyl in den verwendeten Schichtbelegungen das Licht kaum absorbiert, wird der Schleier

in der S_G die gemessene Schwärzung, S_S der Schleier und S_M die Maximalschwärzung ist. Als Maß der Empfindlichkeit wurde

$$\varepsilon = (1/D) S_n = \text{const.} \quad (D = \text{Dosis}) \quad (2)$$

benutzt. Die Energieabhängigkeit wird entsprechend einem Vorschlag von Dorneich und Schäfer (6) durch den „Härtefaktor“ HF beschrieben, unter dem im folgenden der Quotient aus der Maximalempfindlichkeit der Schicht bei etwa 45 keV und seiner Minmalempfindlichkeit zwischen etwa 600 und 1000 keV bei kleiner Normalschwärzung verstanden werden soll:

$$(HF) S_n = \text{const.} < 0,2 = \frac{(D_{\min.}) S_n = \text{const.} < 0,2}{(D_{\max.}) S_n = \text{const.} < 0,2} \quad (3)$$

Der Härtefaktor ist nämlich keine konstante Größe, da die Schwärzungskurven $S = f(\log D)$ von Strahlen verschiedener Energie nicht streng parallel verschoben sind, sondern in Form und Maximalschwärzung deutlich voneinander abweichen können*. Am ehesten sind die im annähernd linearen Bereich der Funktion $S_n = f(D)$ gemessenen Werte vergleichbar. Die reproduzierbare Messung der Energieabhängigkeit ist mit einigen Schwierigkeiten behaftet. Vorbedingung ist zunächst die Erfüllung der Elektronengleichgewichtsbedingung für den Film und die zur Dosismessung benutzte Ionisationskammer.

Beachtet werden muß weiterhin die weitgehende Ausschaltung der Streustrahlen, etwa vergleichbare Bestrahlungsdauer bei allen Quantenenergien und ein annähernd gleicher Zeitraum zwischen Belichtung und Entwicklung zur Vermeidung unkontrollierbarer Reziprozitäts- und Fadingeffekte. Selbstverständlich müssen die Proben unter identischen Bedingungen gelagert und ausentwickelt werden. An einen gleichmäßigen Guß sind hohe Anforderungen zu stellen. Unterschiedliche Ergebnisse verschiedener Beobachter können ihren Grund auch in abweichenden Bestrahlungsbedingungen haben. Da es im Röntgenbereich zwischen etwa 30 und 200 keV kaum Isotopen gibt, die eine monoenergetische Quantenstrahlung liefern und in Halbwertszeit und Zugänglichkeit den zu stellenden Anforderungen genügen, muß durch harte Filterung der inhomogenen Röntgenstrahlung konventioneller Röntengeräte eine möglichst homogene Strahlung erzeugt werden. Naturgemäß ist das Meßergebnis aber besonders im Bereich von etwa 50–150 keV, in dem sich die Empfindlichkeit stark mit der Quantenenergie ändert, sehr empfindlich gegen eine Verbreiterung des Energiespektrums.

Die Bestrahlungszeiten lagen zwischen 30 und 100 Sekunden. Für die Röntgenbestrahlungen wurde eine Spezialausführung einer zweipoligen Seifert-Isovolt-300-Anlage mit magnetischer Blei-Schlitzblende benutzt. Durch eine vorgeschaltete Blei-Lochblende wurde das Strahlenbündel auf den notwendigen Minstdurchmesser begrenzt. Die Röntgenröhre ist so aufgestellt, daß der Strahl erst nach über 5 m auf Festkörper (Mauerwerk) trifft.

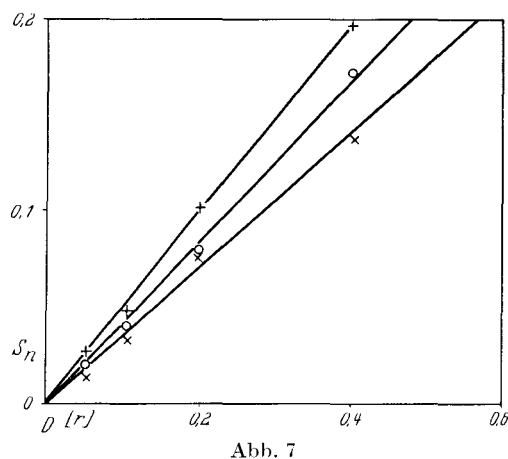


Abb. 7
Schwärzungskurven der Emulsion 3 bei 1250 keV Quantenenergie unter Elektronengleichgewicht bei Verpackung in Schwarzpapier (x), weißes Papier (O) und Aluminiumfolie (---).

* Da der Grund dieser Erscheinungen hauptsächlich in der unterschiedlichen Keimverteilung im Korn in Abhängigkeit von der Ionisationsdichte der einwirkenden Strahlen liegt, hängt die Ausprägung des Effektes auch stark von den Entwicklungsbedingungen (Oberflächen- oder Innenbildentwicklung usw.) ab.

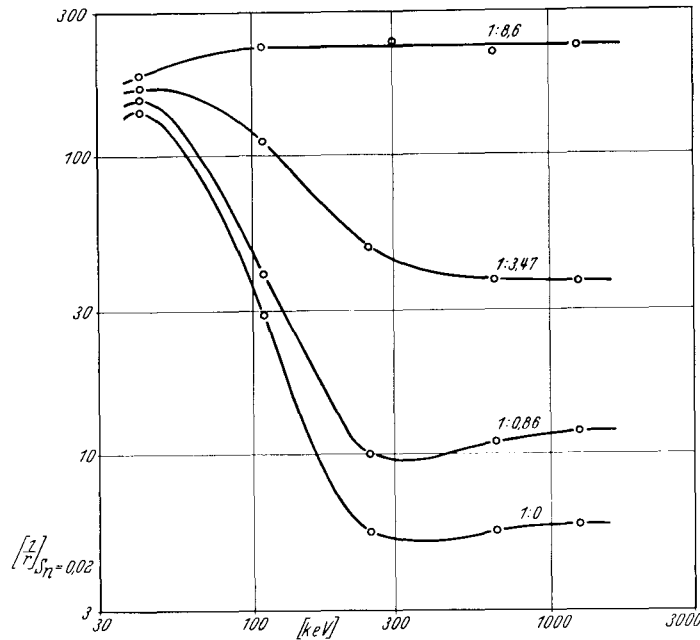


Abb. 8

Energieabhängigkeit der Empfindlichkeit verschiedener Agfa-Sino-Filme mit wechselndem Verhältnis AgBr/Terphenyl.

mit Umpumpeinrichtung und automatischer Temperaturregelung für den Entwickler 4 Minuten bei 20° C in Röntgen-DIN-Entwickler entwickelt, nach 30 Sekunden Zwischenwässerung 10 Minuten fixiert und gewässert. Die Schwärzungsmessung erfolgte mit dem Baldwin-Radiological-Densitometer, das Messungen bis zur Schwärzung 6 mit einer Genauigkeit von besser als $\pm 0,02$ gestattet.

Tabelle 2

Eigenschaften einer Agfa-Sino-Emulsion mit verschiedenem p-Terphenylgehalt

Emulsion Nr.	Verhältnis AgBr/Terph.	Terphenylschleier	Gesamtschleier (frische Em.)	Gesamtschleier nach 1/2 Jahr	Maximalschwärzung
1	1:0	—	0,08	0,15	3,49
2	1:0,86	0,23	0,28	0,30	2,43
3	1:3,47	0,50	0,59	0,69	3,38
4	1:8,6	0,75	0,88	1,18	3,99

Abb. 8 zeigt das Ergebnis einer Bestrahlungsreihe mit einer Röntgenemulsion (Agfa Sino) ohne und mit Terphenylzusätzen. Aus Tab. 2 geht hervor, daß durch Lichtstreuung bedingte „Terphenylschleier“ die praktische Anwendbarkeit des Filmes nicht beeinträchtigt, wie auch der Silber-Grundsleier nach halbjähriger Lagerung bei etwa 20° C und normaler Luftfeuchtigkeit erst bei sehr hohem Terphenylgehalt deutlich beeinflußt wurde.

Durch das Experiment wird nicht nur bewiesen, daß sich erhebliche Mengen organischer Fluoreszenzkörper auch in hochempfindliche photographische Schichten einbringen lassen, ohne daß deren mechanische oder photographische Eigenschaften sich nachteilig ändern, sondern auch, daß die Fluoreszenzlichtausnutzung durch diesen Inkorporationsvorgang ganz wesentlich

Für Radiokobaltbestrahlung fand ein ebenfalls fernbedienter Isotopenarbeitsbehälter, für Cs 137 eine spezielle Bestrahlungsanordnung Verwendung: das in einem senkrecht einbetonierten Stahlrohr aufbewahrte Isotop kann vom Nebenraum aus über einen Seilzug in die Ebene eines Tisches mit verstellbarer Platte hochgezogen werden, auf dem die Filme in berechneten Abständen aufgestellt sind, und fällt nach Bestrahlungsende in das Aufbewahrungsrohr zurück.

Als Dosimeter wurde das Philips-Universal-Dosimeter mit verschiedenen Meßkammern benutzt. Bei Gammabestrahlung wurde die Meßkammer mit einer Plexiglas-kappe von 6 mm Wandstärke versehen. Die Filme wurden, in Schwarzpapier verpackt, hinter 3 mm starkem Plexiglas bestrahlt und etwa 4 Stunden nach Bestrahlungsende in einer Tankanlage

gesteigert wird. Hoerlin (2) hatte gefunden, daß 294 mg/cm² Terphenyl als Fluoreszenzschichten zu beiden Seiten der Emulsion notwendig sind, um unter optimalen Bedingungen die Kompensation zu erreichen. Die Versuchsemulsion 4 enthält dagegen nur wenige mg/cm² Terphenyl.

Für die praktische Emulsionsherstellung wäre es dennoch besonders bei unempfindlichen Emulsionen, deren höherer Härtefaktor einen höheren Terphenylzusatz zur vollständigen Kompensation erfordert, aus emulsions-technischen Gründen wünschenswert, den Terphenylzusatz niedriger zu halten. Es liegt deshalb der Gedanke nahe, die Kompensation teilweise in bekannter Weise durch Vorschalten von Metallfiltern zu erwirken, durch die energiearme Strahlen stärker absorbiert werden als energiereiche, bei denen sich infolge der

ausgelösten Elektronen u. U. sogar ein Verstärkungseffekt zeigt. Mit steigender Filterdicke nimmt im Bereich energiearmer Strahlung die Absorption stark zu, während im Gammabereich die Dicke des Absorbers von geringerem Einfluß ist. Nun läßt sich durch Erhöhung der Ordnungszahl des Filtermetalls zwar der Härtefaktor vermindern, aber gleichzeitig verschiebt sich auch das Empfindlichkeitsmaximum in unerwünschter Weise zu höheren Energien. Ähnlich ist der Effekt steigender Filterdicke. Für ein praktisch vorgeschlagenes Dosimeter zur energieunabhängigen Messung größerer Strahlendosen für Zwecke des Bevölkerungsschutzes wurde das relativ günstige Kupferfilter ausgewählt, mit dem bei Kombination mit einer exakt abgestimmten terphenylhaltigen Agfa-Agepe-Emulsion ab etwa 130 keV Energieunabhängigkeit erhalten wird (Abb. 9).

Fehler

Eine Abhängigkeit der Dosisschwärzung vom Einfallswinkel der Strahlung ist zunächst nicht zu erwarten, da die geringe Fläche, die sich dem Quantenregen bei Schrägeinfall darbietet, exakt kompensiert wird durch die größere, von der Strahlung in der Schicht zurückgelegten Wegstrecke. In Experimenten verschiedener Autoren zeigte sich aber, daß besonders bei niedriger Quantenenergie infolge Absorptionsverlusten usw. bei schrägem Einfall der Quanten die Dosisschwärzung stark abnimmt und auf weniger als die Hälfte des Ursprungswertes absinken kann – eine Erscheinung, die für die Erfordernisse des praktischen Strahlenschutzes sehr unerwünscht ist. Auch bei hohen Quantenenergien ist diese Richtungsabhängigkeit noch vorhanden und kann, besonders bei Filter-Film-Kombinationen, beträchtlich sein. Es ist nun zu erwarten, daß diese Abhängigkeit bei Terphenylzusatz geringer wird, da das vom Szintillator emittierte Licht völlig von der Rich-

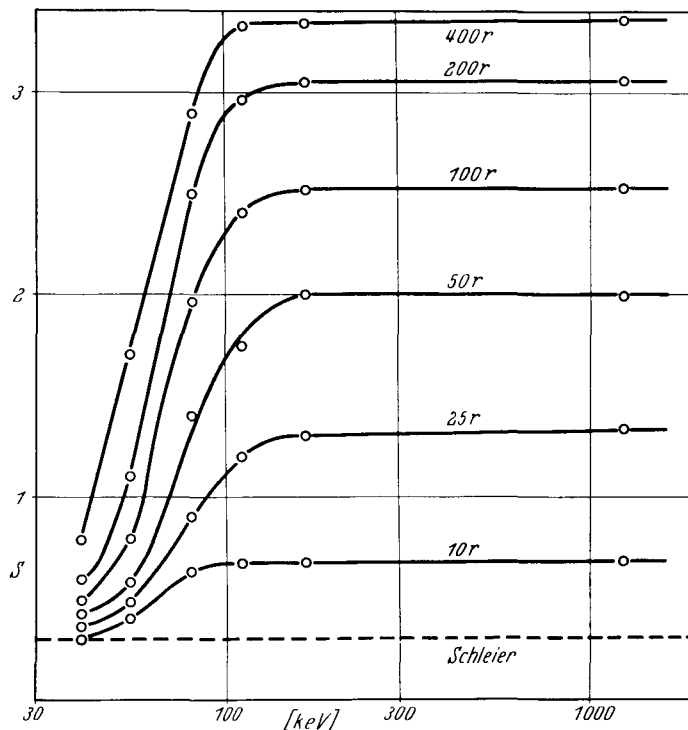


Abb. 9

Energieabhängigkeit der Dosisschwärzung einer Kombination von 1 mm Kupferfilter und einem abgestimmten terphenylhaltigen Agfa-Agepe-Film bei verschiedenen Strahlendosen (nach Messungen von R. Matjec aus dem Wiss. Phot. Labor der Agfa AG).

tung der anregenden Strahlung ist im Gegensatz zu der Streuung bzw. Rückstreuung der ausgelösten Elektronen. Tatsächlich ist, wie Abb. 10 zeigt, bei geringer Quantenenergie und damit geringem Lichtanteil zur Gesamtschwärzung der Unterschied zwischen einer terphenylhaltigen und einer terphenylfreien Emulsion gering, während bei hohen Energien die Richtungsabhängigkeit des Terphenylfilmes deutlich geringer ist als die der konventionellen Emulsion.

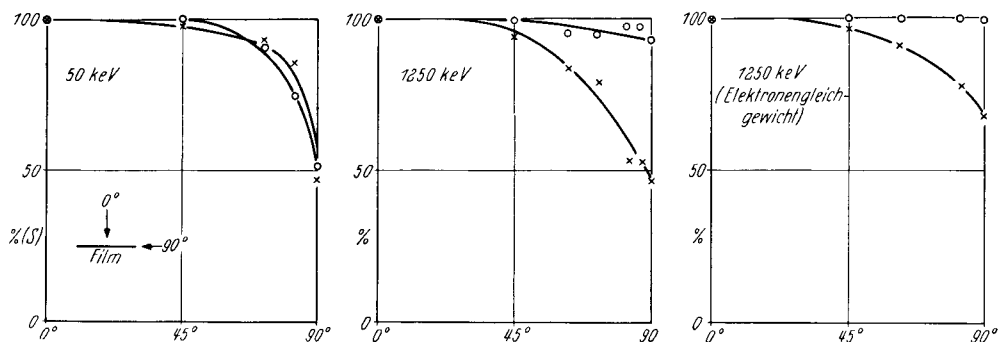


Abb. 10

Abhängigkeit der Dosisschwärzung vom Einfallswinkel der Strahlung bei verschiedenen Energien mit einem Sinofilm ohne (x) und mit (O) Terphenylzusatz (Emulsion 1 und 4) gemessen.

Es lag nahe, für die Fluoreszenzemulsion einen Langzeitfehler zu vermuten, wie er bei reiner Lichtbelichtung auftritt. Durch geeignete Methoden der Emulsionstechnik (7), durch Vorbelichten der Schicht (8) und durch Stabilisatorzusätze zum Entwickler (2, 9) läßt sich, im letztgenannten Fall freilich unter Empfindlichkeitsverlust, dieser Fehler erheblich reduzieren. Anscheinend wird

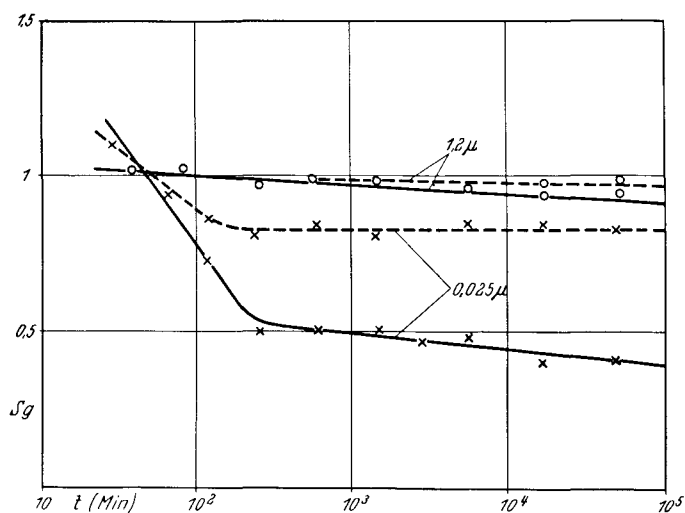


Abb. 11

Gemessene Schwärzung einer Agfa-Mikrat-Platte (x) mit einem mittleren Korndurchmesser von $0,025 \mu$ und einer Agfa-Sino-Emulsion (O) mit $1,2 \mu$ als Funktion der Zeit zwischen Bestrahlung mit 44-keV-Röntgenstrahlung (je 300 r bzw. 10 mr) und Entwicklung (gleichzeitige Entwicklung 4 Minuten bei 20°C in Röntgen-DIN-Entwickler) bei Lagerung der exponierten Proben unter Normalbedingungen (etwa 20°C , 60% relative Luftfeuchtigkeit) ——— und im Exsikkator über Kalziumchlorid — — —.

aber bei dem Fluoreszenzfilm der Langzeitfehler nur durch ein „intensitätsabhängiges Fading“ vorge-täuscht, denn beim Entwickeln der Proben innerhalb einiger Stunden nach Ende der Bestrahlung zeigt die terphenylhaltige Schicht ebenso wenig wie terphenylfreie Schichten eine Abhängigkeit der Dosisschwärzung von der Dosisleistung. Dem Fading kann durch emulsionstechnische Maßnahme, geeignete Verpackung und Lagerung (Feuchtigkeitsausschluß) begegnet werden. Das in Abb. 11 dargestellte Ergebnis eines Versuches, bei dem Proben einer feinkörnigen und einer grobkörnigen Emulsion unter verschiedenen Bedingungen verschieden lange gelagert wurden, zeigt im wesentlichen Übereinstimmung mit den Ergebnissen von McLaughlin und Ehrlich (10): der Latentbildschwind der feinkörnigen Emulsion ist infolge der relativ größeren

Kornoberfläche wesentlich stärker ausgeprägt als derjenige der grobkörnigen Emulsion. Durch Feuchtigkeitsausschluß konnte die Regression des Latentbildes in beiden Fällen reduziert werden.

Herrn Prof. Dr. H. Frieser danke ich herzlich für seine ständige Anteilnahme am Fortgang dieser Arbeit, wertvolle Diskussionen und Anregungen. Auch bin ich den Herren Priv.-Doz. Dr. E. Klein und Dr. R. Matejcek für anregende Diskussionen, der Agfa-AG., Leverkusen, für die Herstellung der Emulsionen und die Erlaubnis, im Wissenschaftlich-Photographischen Laboratorium gewonnene Ergebnisse zu verwenden, sowie dem Vorstand und der Leitung der Abt. Strahlenschutz der Kernforschungsanlage Jülich für die großzügige Unterstützung der Untersuchung zu Dank verpflichtet.

Zusammenfassung

Vorversuche zeigen, daß die Einverleibung von p-Terphenyl als Szintillator in eine hochempfindliche Röntgenemulsion die günstigsten Resultate erwarten läßt, da 1. mit abnehmender Emulsionsempfindlichkeit deren Energieabhängigkeit der Dosisschwärzung größer wird, 2. der Latentbildschwund ausgeprägter wird und 3. bei sehr unempfindlichen Emulsionen ein Reziprozitätsfehler auftritt. Der Versuchsfilm zeigt die auf Grund der theoretischen Überlegungen wahrscheinlichen Eigenschaften steigender Energieunabhängigkeit und Empfindlichkeit gegen Strahlung mit steigendem Terphenylgehalt bei geringer Abhängigkeit der Dosisschwärzung vom Einfallswinkel der Strahlung. Unter Umständen erweisen sich auch Metallfilter-Fluoreszenzfilm-Kombinationen als vorteilhaft.

Summary

From the incorporation of p-terphenyl as scintillator in a high speed X-ray emulsion favourable results may be expected for the following reasons. 1. The energy dependence of the blackening-dose relationship increases with decreasing sensitivity of the emulsion. 2. The fading of the latent image is more marked on low-speed emulsions. 3. On very insensitive emulsions reciprocity failure occurs. On account of theoretical considerations the increase of energy-independence and of speed in the gamma region with increasing terphenyl content are predicted from the experimental films. The dependence of the blackening per dose on the angle of incidence also decreases with increasing terphenyl content. (G. S.)

Résumé

Des essais préliminaires montrent que l'adjonction de p-Terphenyl comme scintillateur dans une émulsion radiologique très sensible permet d'obtenir les résultats les plus favorables, car 1. avec une diminution de la sensibilité de l'émulsion la dose de noircissement dépendant de l'énergie devient plus élevée; 2. la disparition de l'image latente est plus prononcée et 3. une faute de réciprocité doit être prise en considération avec des émulsions très peu sensibles. Le film expérimenté montre en se basant sur les conceptions théoriques les propriétés probables d'une indépendance progressive de l'énergie et de la sensibilité à l'égard d'une irradiation en augmentant le taux de Terphenyl, la dose de noircissement dépendant moins de l'angle d'incidence de l'irradiation. Dans certains cas, la combinaison filtre métallique et film fluorescent s'est révélée intéressante. (A.-M. M.)

Resumen

Experimentos preliminares demuestran que la incorporación a una radioemulsión altamente sensible de p-Terfenil como escintillador permite los mejores resultados, ya que, en primer lugar, con sensibilidad de emulsión decreciente aumenta el ennegrecimiento por dosis proporcional a la energía, segundo, porque la pérdida de la imagen latente se hace marcada, y tercero, porque aparece aplicando emulsiones poco sensibles un defecto recíproco. La placa experimental refleja las cualidades probables por reflexiones teóricas y que se manifiestan por independencia creciente de energía y sensibilidad frente a la irradiación con una cantidad progresiva de Terfenil, dependiendo ligeramente el ennegrecimiento de dosis del ángulo de incidencia de los rayos. A veces resulta también ventajosa una combinación de filtros metálicos con placas fluorescentes. (E. L.)

Schrifttum

(1) Glocker, R., und Breitling, G.: Naturwiss. 39 [1952]:84. — (2) Hoerlin, H., Clark, R. H., Jones, D. P., Kaszuba, F. J., und Larson, E. T.: ANL-5168 [1953]. — (3) Silberstein, L., und Tuttle, C.: J. Optic. Soc. America 14 [1927]:365. — (4) Trivelli, A. P. H.: J. Frankl. Inst. 239 [1945]:101. — (5) Trivelli, A. P. H.: ibid. 241 [1945]:85. — (6) Dorneich, M., und Schäfer, H.: Phys. Z. 43 [1942]:390. — (7) Eggert, J., und v. Wartburg, R.: Zschr. Elektroch. 61 [1957]:693. — (8) Burton, B. C., und Berg, W. F.: Phot. J. 86B, 2. Comm. 1052 H [1946]. — (9) Larson, E. T., und Levine, H. A.: Phot. Sc. Eng. 1 [1957]:59. — (10) McLaughlin, W. L., und Ehrlich, M.: Nucleonics 12, No. 10 [1954]:34.

Anschrift: Dr. K. Becker, Jülich, Fischerstr. 21